

# 論文内容要旨（和文）

平成22年度入学 博士後期課程

専攻名 電子情報工学専攻

氏名 大山直樹



論文題目 有機無機ヘテロ接合の電荷輸送機構に関する研究

有機無機ヘテロダイオードは、フレキシブルな有機エレクトロニクス回路において、電源用整流回路や電波受電での検波回路に利用されることが期待されている。しかし、これまで報告されていたダイオードでは、直列抵抗が高く、かつ、理想係数が高いため、順方向電流が抑制され、回路としての電力損失となることが懸念されている。有機無機ヘテロダイオードに関する背景として、どのようなメカニズムで整流性が発現し、そして、理想係数などのダイオード定数がどのようにして制限されるのか理解が進んでいない状況にあった。本研究では、こうした状況を踏まえ、いかに大きい電流密度をもつヘテロ接合ダイオードを得るかの方向性を明らかにするために、ダイオードの試作と特性解析を行い、通電のメカニズムのモデル化とそれに基づく性能向上のアイデアの提案、および、その実証を行った。

本論では、第一章として、昨今の有機エレクトロニクスにおけるフレキシブル化の事情を解説し、有機無機ヘテロ接合ダイオードの利用分野、研究報告事例について述べた。さらに、有機無機ヘテロダイオードと概念を同じくする無機ショットキーダイオードの研究の進展についてもまとめた。また、数多くある有機無機ヘテロ接合ダイオードについて明らかにされている点とそうでない点を明確化するために、文献調査結果をまとめている。これらの事情を踏まえ、本研究の目的を設定し、本論の構成についてまとめてある。

第二章においては、本研究で実施されたダイオード素子の作製方法と電気特性評価方法について解説した。また特性評価に関わる解析手法、とくに数値計算を含むアルゴリズムについてもまとめ、参考文献を付しながら、その有効性についても論じている。

第三章においては、低分子の有機材料として有機エレクトロニクスの分野で多用されている6Tとn型Siを用いての有機無機ヘテロ接合の製作、評価、および、解析結果について述べた。電気特性にてショットキー特性が得られたことより、ショットキー障壁、内蔵電位、理想係数を抽出し、Si側で空乏層が形成され、 $\text{SiO}_2$ を界面層とするMIS型ダイオードであること、6T膜で豊富なキャリアが存在することを仮説としたモデル化を行い、その有効性を議論した。電極Auと有機膜6Tの接合のオーム性をI-V測定により確認して、同接合からの構造全体でのショットキー性への関与は少ないことを示した。

第四章においては、6Tと同じく低分子材料として多用されるペンタセンとn-Siの有機無機ヘテロ接合の製作、評価、および、解析についてまとめた。ここでも、ショットキー整流特性から、ショットキー障壁、内蔵電位、理想係数を抽出し、仮説をたてモデル化を行った。

第五章においては、工業的にもっとも実用化が期待されている塗布形成可能なP3HTを用いた接合についてまとめた。ここでもショットキー整流特性から、ショットキー障壁、内蔵電位、理想係数を抽出し、仮説をたてモデル化を行った。第三章、第四章の結果と併せて、さらに、Au電極とP3HTの接合がオーミック性であることの確認、四端子測定によって求めたP3HTのキャリア密度を基に、バンドモデルを提案した。大電流化の方向性として、接合に介在する界面酸化膜の抑制の効果の考察を行った。さらにモデルの前提と有効性について議論を行っている。

第六章においては、P3HT/n-Si接合での界面酸化層の抑制効果についてまとめた。界面酸化膜の抑制方法としてSiC処理、post-HF処理を考案した。処理なしと比べて酸化膜低減の効果が顕著であり、特性評価を通して、理想係数、障壁高さ、直列抵抗、界面準位密度などと界面酸化膜厚の相関をまとめ、素子の大電流密度化の方策を得た。特にSiC処理では他の文献に類を見ないほど電流密度の増強が見られ、電流密度の大電流化策のとしての有効性を示すことができた。

第七章においては、前章で得た知見をもとに大電流密度化へのアイデアをまとめた。ショットキ一性の促進、層間膜の薄膜化、界面準位の分布と密度の制御、電極材とのオーミック性の確保、構成膜の抵抗化などの項目を中心に提案した。

第八章においては、本研究の結果を総括し、今後の課題をまとめた。

本研究で得られた価値は、従来全く理解が進んでいなかった有機無機ヘテロ接合ダイオードについて、ショットキ一解析を試み、大電流化の制限要因についてモデルを通して理解を試み、得られた仮説を、素子評価を通して実証している点にある。以上の成果については、査読付きジャーナル論文誌三件に掲載されており、その掲載情報を本論最後に付してある。

- (注) ① タイプ、ワープロ等を用いてください。10pt 2,000字程度（2頁以内）とします。  
② 論文題目が英文の場合は、題目の下に和訳を（ ）を付して併記してください。

# 学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

平成 25 年 2 月 7 日

理 工 学 研 究 科 長 殿

## 課程博士論文審査委員会

主査 廣瀬 文彦

副査 松下 浩一

副査 高橋 豊

副査 斎藤 敦



学位論文の審査及び最終試験の結果を下記のとおり報告します。

## 記

### 1. 論文申請者

専攻名 電子情報工学専攻  
氏名 大山直樹

### 2. 論文題目（外国語の場合は、その和訳を併記する。）

有機無機ヘテロ接合の電荷輸送機構に関する研究

### 3. 審査年月日

論文審査 平成 25 年 1 月 22 日 ~ 平成 25 年 2 月 4 日

論文公聴会 平成 25 年 2 月 4 日

場所 工学部百周年記念会館セミナー室

最終試験 平成 25 年 2 月 4 日

### 4. 学位論文の審査及び最終試験の結果（「合格」・「不合格」で記入する。）

- (1) 学位論文審査 合格  
(2) 最終試験 合格

### 5. 学位論文の審査結果の要旨（1,200 字程度）

別紙のとおり

### 6. 最終試験の結果の要旨

別紙のとおり

## 別 紙

専攻名	電子情報工学専攻	氏名	大山直樹
学位論文の審査結果の要旨			

本研究は、フレキシブル有機エレクトロニクス回路において検波素子や光ディテクタとして使用される有機無機ヘテロダイオードの高性能化に関するものである。この分野において、従来のダイオードでは理想係数が高いため、順方向電流が抑制され、電力損失が大きいことが問題であった。本研究では、電流密度向上の方策を抽出するため、ダイオードの試作評価を通して電荷輸送機構のモデル化を行い、それに基づく性能向上のアイデアの提案と実証を行っている。

本論の第一章では、昨今のフレキシブル有機エレクトロニクス回路の事情を解説し、有機無機ヘテロ接合ダイオードの応用、研究事例をまとめ、電荷輸送機構を考えるためのモデルと大電流化の方策の抽出を目的とし、本論の構成についてまとめてある。

第二章においては、ダイオードの作製方法と電気特性評価方法について解説している。また電気特性の解析手法、とくに数値計算を含むアルゴリズムについてまとめ、参考文献を付しながら、その有効性についても論じている。

第三章から五章まで、有機材料としてゼクチオフェン、ペンタセン、P3HTを用いたn型 Siとのヘテロ接合の作製と、その評価結果について述べられている。いずれの接合も整流性がショットキーで説明できることを見出し、ショットキー障壁、内蔵電位、理想係数を抽出している。主としてSi側で空乏層が形成されていることを示し、このデバイスがSiO<sub>2</sub>を界面層とするMIS型ダイオードであることを明らかにしている。さらに、バンドダイアグラムを提示し、大電流化のために理想係数低減が必要であることを見出している。

第六章では、界面層となる Si 表面の酸化層の膜厚と電流密度の相関を系統的に調べ、界面酸化層を抑制することで、従来品の二桁以上の大電流化が実現できること、その方策として界面の SiC 処理が有効であることを報告している。

第七章ではこれまでの成果をまとめ、さらなる向上の方策と大電流化の限界が議論されており、有機無機ヘテロ接合も Si エレクトロニクス相当の高性能化が果たせる可能性について述べている。

第八章においては、本研究の結果を総括し、今後の課題をまとめてある。

本論の価値は、従来全く理解が進んでいなかった有機無機ヘテロ接合ダイオードについて、ショットキー解析を試み、大電流化の制限要因についてモデルを通して理解を試み、得られたアイデアを、素子評価を通して実証している点にあり、十分に新規性が認められる。得られた知見は、有機無機ヘテロ接合に関するデバイス工学分野の進展に寄与するものと考えられ、工業的には有機エレクトロニクスの電源回路の高性能化にも貢献することが期待される。本論の内容は、査読付き英文論文誌に三件に掲載され、また国際会議1件で内容公開されており、当該専攻の審査基準を満たしている。以上の理由から、本論の学位論文審査は合格とする。

## 最終試験の結果の要旨

一時間の学位論文に関する発表と質疑応答による討論をもって試験とした。

発表内容から、当該研究を十分に理解し説明できていると判断された。研究の背景、技術動向、問題提起についても整理され、わかりやすい形で表現され、結果の解釈においても、その前提と限界について十分に考察が行われ、論理的に展開されていると判断された。質疑応答から、関連する技術についても十分な知識を有していると判断された。

以上の結果をもって、最終試験を合格とした。